



公開特許公報

特許庁長官 片山 石郎 殿
(1975年5月9日茶屋出版第574132号)
特許願 (特許願の提出日)
(昭和51年5月9日(1976年5月10日))
(4000円)

- 特許庁長官 片山 石郎 殿
特許願の提出日 昭和51年5月9日(1976年5月10日)
1. 発明の名称 炭素組成物の分散性改良のための表面処理
2. 特許請求の範囲に記載された発明の要旨
3. 発明者 アメリカ合衆国、ニュージャージー 08854、
住居(住所) ビスカウエイ、プレット ストリート 88
氏名 スチュアート エツチ、ガンスロー (外1名)
4. 特許出願人 アメリカ合衆国、ニュージャージー 08876、
住居(住所) アリソン・アール、アインデルン アヴェニュー 10
氏名 ナショナル、スター・アンド・ケミカル コーポレーション
代表者 アルフレッド・ジー、バタグリア
氏名 アメリカ合衆国
5. 代理人 郵便番号 100
東京都千代田区九段の3-12-1ビル810号室
外資出 岡 正 矢 (外5名)
(8444) 電話 (310) 551 (11/1) ~ 1003

6. 添付書類の目録
(1) 明細書 1 通
(2) 願書図面 1 通
(3) 願書図面 1 通



明 細 書

1 発明の名称 炭素組成物の分散性改良のための表面処理

2 特許請求の範囲

- 1 水吸湿性組成物の水中への分散性を改良する表面処理法であつて、
(a) 炭素イオン及び分子電解質を主成分とする炭素組成物、少なくとも一つの多価金属陽イオン、および炭素組成物が實質的に不溶であるような分散系を含む分散系を形成する、
(b) 炭素イオンが炭素組成物の露出表面と錯体形成するのに充分な時間だけ該分散系を約-40℃ないし+150℃の温度に保つ、
(c) 該分散系を除去する、
以上の諸工程をこの順に含むことを特徴とする分散性改良法。

2 特許請求の範囲1に従う方法であつて、炭素イオンは第ⅡA族の金属および第ⅢA

①特願昭 51-136588

②公開日 昭51.(1976)11.26

③特願昭 51-136588

④出願日 昭51.(1976)5.10

審査請求 有 (全15頁)

庁内整理番号

700J KA
6PJP KA
742J KA

⑤日本分類

13P)E0
13P)F2
13P)D2

⑥Int.Cl.

COPK 3/00H
B01D 3/16
B01F 3/12

族ないし第ⅣA族、第ⅠA族ないし第ⅡA族および炭素族の遷移金属のイオンからなる群から選択されることを特徴とする方法。

3 特許請求の範囲1に従う方法であつて、乾燥状態での炭素質組成物1gを含む分散系中に約0.05ないし10.0ミリ当量の炭素イオンを存在させることを特徴とする方法。

4 特許請求の範囲3に従う方法であつて、約0.1ないし2.0ミリ当量の炭素イオンを存在させることを特徴とする方法。

5 特許請求の範囲1ないし4のいずれかに従う方法であつて、脂肪族および芳香族エステル、ケトン、アルキルエステル、5ないし18個の炭素原子を含むアルカン、芳香族、および水溶性性界面活性剤と水との混合物からなる群から該分散系を選択することを特徴とする方法。

6 特許請求の範囲1ないし5のいずれかに従う方法であつて、該分散系を少なくとも一

分間保持することを特徴とする方法。

7 特許請求の範囲 8 に従う方法であつて、
分散係を約 25℃ ないし 110℃ で約 5
ないし 60 分間保持することを特徴とする
方法。

8 特許請求の範囲 1 ないし 7 のいずれかに
従う方法であつて、該懸濁液を該分散系
中でイオン化可能な金属化合物として導入
することを特徴とする方法。

9 特許請求の範囲 1 ないし 8 のいずれかに
従う方法であつて、該組成物が、水溶性の
陰イオン高分子電解質と少なくとも 3 個の
原子価を有する多価金属陽イオンとからな
る水膨潤性で水に不溶の錯化合物を含むこ
とを特徴とする方法。

10 特許請求の範囲 1 ないし 8 のいずれかに
従う方法であつて、該組成物が、水膨潤
性かつ水に不溶で共有交差結合した陰イ
オン高分子電解質を含むことを特徴とする方
法。

る収縮性組成物。

15 特許請求の範囲 14 に従う組成物であ
つて、第Ⅰ族金属のイオンおよび第Ⅱ族
ないし第Ⅵ族、Ⅰ族ないしⅧ族、
および第Ⅳ族の過遷金属のイオンからなる
群から該陽イオンを選択することを特徴と
する組成物。

16 特許請求の範囲 14 または 15 に従う
組成物であつて、該粒子が乾燥状態での該
組成物 1g あたり約 0.05 ないし 10.0 ミ
リ当量の該陽イオンを含むことを特徴とす
る組成物。

17 特許請求の範囲 14 ないし 16 のい
ずれかに従う組成物であつて、該粒子の内部
が、水溶性の陰イオン高分子電解質および
3 個以上の多価金属陽イオンからなる水膨
潤性で水不溶性の錯化合物を含むことを特
徴とする組成物。

18 特許請求の範囲 14 ないし 16 に従う
組成物であつて、該粒子内部が水膨潤性か

11 特許請求の範囲 1 ないし 8 のい
ずれかに従う方法であつて、該組成物が水溶性
の陰イオン高分子電解質を含むことを特徴と
する方法。

12 特許請求の範囲 1 ないし 11 に従う方
法であつて、乾燥状態での該組成物の収縮
部あたり約 0.6 ないし 100 重量部の該分
散液を存在させることを特徴とする方法。

13 特許請求の範囲 12 に従う方法であ
つて、乾燥状態での該物質組成物の収縮部あ
たりの該分散系中に約 2 ないし 10 重量部
の分散液を存在させることを特徴とする方
法。

14 陰イオン高分子電解質に基づく水分散
性吸水性粒子を含む収縮性組成物であつて、
各粒子がその表面において内部におけるよ
りも大きい結合密度を有していて、その表
面における結合の少なくとも一部が多価金
属陽イオンと該陰イオン高分子電解質との
錯化合物の形成にあずかることを特徴とす

る水不溶性の共有交差結合した陰イオン高
分子電解質を含むことを特徴とする組成物。

19 特許請求の範囲 14 ないし 18 のい
ずれかに従う組成物であつて、該粒子内部が
水溶性の陰イオン高分子電解質を含むこと
を特徴とする組成物。

3 発明の詳細な説明

本発明は主として、収縮性組成物の収縮を
制御してその水分散性を向上させることによ
つてその凝集傾向を減少させる方法及びその
方法によつて製した乾燥吸水性剤に関する。

陰イオン高分子電解質に基づく収縮性組成物
は三つの種類に分かれる。第一種のもは当
分野で古くから知られているもので實質的
に水溶性水コロイド (Hydrocolloid) 物質か
らなっている。このような物質は、それに接
する液体の粘稠度を高める（凝結化）のみで
ある。つまり液体を過剰に加えると、このよ
うな物質により、自ら得た粘稠度を保持する

活性が失われる。しかしながらこのような水溶性物質は予め定められた用途の液体にさらすような場合、例えば糊、粘糊剤、コーティング、織物用のり、水処理および水精製剤、排水処理剤(drainage aids)等々においては有用である。

最近、水に不溶の凝粒状水コロイド吸着剤及びそれを用いた製品の分野において顕著な発展があつた。例えば、吸着性包帯、おむつ、生担タンポンのようなものなどで、水、尿および他の水性体外脱出液を吸収するものである。これらの實質的に水に不溶の化合物はその用途の何倍もの液体を吸いその結晶膨潤するという特性をもっている。それらの化合物は最低自分の寸法の15倍の寸法の液体を吸収しうる。その結晶、各吸着剤粒子は、最初の微細粒子の姿を保つたまま、各々の軸長を数倍増大させる。各粒子は液体と触る以前の形状をおおよそ保つが、中に吸収した液体を中に保つためスケールがはるかに大々く

る。水に不溶の化合物が液体を受容すると實質的に液体をその中に固定し、その結果液体で膨脹した微粒子体はゼラチン状になる。液体を吸つて膨潤した水不溶性粒子の固まりは、各吸着剤粒子が吸収した液体のために液体で膨脹しぶどう形もしくは粒状の形状を呈するので、粒状体の形のごとく球形となる。各膨潤粒子は粘りがあるので液体で膨潤した粒子は凝まつて屑状の塊をなす。その粒子は吸収しうる以上の水が存在していても粒状体の形状を保つ。液体で膨潤した粒子は吸収水を固く固定するが、乾燥させると脱水し、程度の差はあるが元のサイズに戻る。この時には相程度の残はあるが以前通りに液体を吸収固定しうるようになる。

上に述べた水に不溶の吸着組成物は2通りの方法のうちのいずれかで形成される(図2および図3番目の欄に相当する)。米国特許第3,628,534号、第3,670,731号および第3,670,731号に記載されている

ように、以上のモノマー(それらをホモポリマー化すれば水溶性ポリマーとなる)をモノマーと共重合体させ、原子価を共有するようにその分子と交差結合させて限定された水不溶性を導入する。一般的に、交差結合はヒドロコロイドの重合体網が水性液体に溶けな

ような程度にいれるのであるが、柔軟性は保つていて水性液体をその内部に吸収したとき膨潤する。

あるいは、1975年3月7日に受理された米国特許申請番号第358,281号に記載されているように、このような水不溶性の組成物は重合および以上のモノマー(それはもしホモポリマー化されると水溶性重合体となる)を少なくとも3個の原子価を有する金属陽イオンと陰イオン化合物の形成によつて制してもよい。原子価を共有するように交差結合した組成物よりこの錯イオン化合物の有利な点は従前は形成が容易であるのと高いpHでは解離しより低いpHでは再び錯化合物となるから得

る用途に対する誘体となりうることである。

これら三種の吸着剤はすべて、それぞれの相対的な閉鎖や欠陥に関係なく出現分野でランピングとか、因子になるとかぬれにくいとか低水分散性とか似々と呼ばれている一つの問題にぶつかっている。吸収すべき水性液体にさらしたとき、その吸着組成物はその水性液体中に分散しにくい。そして少なくとも初めは液体で膨潤した物質からなる空洞と比較的凝縮した物質からなる内側とでできた目に見える固まりを形成する。特に比較的微細な粒子の状態で使用したときには、この吸着剤の凝出状態はゲル状の固まりとなるので水性液体はそこを透つて中に入ることができなくなる。従つて、少なくとも初めは、その組成物の吸着能力はその空洞の吸着能力を示すのみで内部の能力は示していないことになる。吸着組成物を吸収すべき水性液体に浸出させる速度を速くするか、吸着組成物の粒子の比較的大きいものを使用するとか浸出している間投

押するとかすれば凝固する傾向を減少させることができる。一方露出後に析出したものはいは時間が経過すれば一度中じた固まりは溶解しやすい。しかしながら上記の手段のうちの一つまたはそれ以上のものを使用して見ない特別の吸湿剤適用例も多いので、吸湿組成物により高い水分散能(すなわち、もつとよく隔れる凝固しにくいこと)をもたせる必要が存在する。

本発明の目的の一つは陰イオン高分子電解質に基づく吸湿組成物の水分散性または「隔れ」を向上させる方法を供することである。

別の目的は、水溶性組成物、原子価を共有するように交差結合した水に不溶の組成物および水に不溶の陰イオン化合物に対して効力のある方法を供することである。

更に本発明の目的は、吸収すべき水性液中に対して吸湿組成物を短い時間のうちに吸てたときできる固まりの量を減少させる方法を提供することである。

更に別の目的は、短縮された時間のうちに吸湿組成物を吸収すべき水性液中に完全に分散せしめる方法を提供することである。

吸湿の目的の一つは、このような方法に従って処理して製した吸湿組成物を提供することである。

陰イオン高分子電解質をベースとする吸湿組成物の水分散性もしくは隔れは、その吸湿組成物の表面を処理して露出表面に陰イオン結合を形成させることによつて改変できるといことは現在までに発見されている。吸湿に陰イオン結合を形成することは、水性液が吸湿組成物の内部へ浸透するのを助けるゲルが表面にできるのを阻止するのであると信じられている。こうすれば、多数の水溶性液体に露出にさらしたときでも、その吸湿組成物はごく短時間のうちに水性液を吸収する能力をフルに発揮できるようにする。そのとき、内相が水性液を吸収すると、その吸湿組成物がその水性液中に分散するのを助けることをな

る。

表面処理工程は、陰イオン高分子電解質をベースとする吸湿剤、少くとも一価類の多価金属陰イオン、およびその組成物が実質的に不溶であるような分散能を含む分散系を形成することを包含している。その分散系を、陰イオンが組成物の露出表面と陰イオンを形成するのに充分な時間約-40℃から約+130℃の間に維持する。その吸湿剤を分散系から除去すると加工した水分散性吸湿組成物が得る。

吸湿組成物は前述した3種類のうちのいずれでもよい。すなわち、(1)水溶性陰イオン高分子電解質、(2)水膨脹性で水に不溶の原子価を共有するように交差結合した陰イオン高分子電解質、または(3)水膨脹性で水に不溶の、水溶性陰イオン高分子電解質および少くとも3個の原子価を有する多価金属陰イオンの陰イオン化合物。陰イオンは一般的に、周期表のII族の金属およびIIIないしIV、

IないしIV族およびIV族の過遷金属のイオンからなる群の中から選択される。分散能は一般的に脂肪族および芳香族アルコールで1ないし18個の炭素原子を含むもの、脂肪族および芳香族エステル、ケトン、アルキルエーテル、5ないし18個の炭素原子を含むアルカン、芳香族、および水と混和可能な溶剤と水との混合物からなる群から選択される。典型的な場合分散系は、塩酸ベースで吸湿物1gあたり約0.5ないし100gの分散能と約0.5ないし10.0ミリ当量の陰イオンを含む。

好ましい実施例においては分散系は塩酸ベースで吸湿物1gあたり、約2ないし10gの分散能と約0.1ないし2.0ミリ当量の陰イオンを含んでいる。その分散系は前述の温度に最低1分間保持し、好ましくは約25ないし110℃の間の温度で約5ないし60分間保持して吸湿組成物の露出表面に瞬時に陰イオン結合ができるようにする。

吸湿組成物によつて制した水分散性吸湿

則粒子は粒子表面における結合密度の方が粒子内部におけるそれより大きいという特徴を有する。粒子表面における結合は少くとも一部には、本発明の方法によつて得られるような陰イオン高分子電解質の多価金属陽イオンによる錯イオン結合を含んでいる。

この表面処理工程の第1段階は、陰イオン高分子電解質、少くとも一種の多価金属陽イオン、およびその塩類物質が實質的に不溶の分散系を含む分散系を形成することである。これらはそれぞれ順番に下に論じてゆく。

塩類組成物について

3種の塩類組成物は、水溶性組成物、原子価を共有するように交換結合した水に不溶の組成物、および錯イオン形成した水に不溶の組成物である。

第1種の塩類組成物（水溶性）は、實質的な水溶性および陰イオン原子団（呼ましくはカルボキシル基、スルホン酸塩、硫酸塩または硝酸塩などの陰イオン原子団）の存在を

特徴とする。天然または合成ポリマーを含む高分子電解質である。天然ポリマーとして好ましいものはデンプンまたはセルロースの陰イオン誘導体であり合成ポリマーとして好ましいものはカルボン酸ホモポリマーまたは少くとも20モルパーセントのカルボン酸ユニット（例えばポリアクリル酸）を含む共重合体である。

高分子電解質を含むカルボン酸の例としては、エチレン不飽和モノマーとモノエチレン不飽和カルボン酸もしくはその部分中和塩との合成共重合体である。好ましい α 、 β -モノエチレン不飽和カルボン酸の例としてはアクリル酸、メタアクリル酸、マレイン酸、無水マレイン酸、イタコン酸、無水イタコン酸、フマル酸、マレイン酸とフマル酸およびイタコン酸の半エステルまたは半アミド、クロトン酸等がある。また好ましい α 、 β -エチレン不飽和モノマーの例としては、アクリルアミドまたはメタアクリルアミドおよびそれら

の N 及び N 、 N ジアルキル誘導体で1ないし18個の炭素原子を有するアルキル基を含むもの、アクリル酸アルキルおよびメタアクリル酸アルキルで1ないし18個の炭素を有するアルキル基を含むもの、ビニルエステル、ビニル芳香族化合物、ジエン等がある。

モノエチレン不飽和カルボン酸のホモポリマーもしくはこれらのモノマーの混合物を用いてもよい。例としてはアクリル酸およびメタアクリル酸のホモポリマーおよびアクリル酸とメタアクリル酸の共重合体がある。

スルホン酸を含む高分子電解質の塩類例としてはモノエチレン不飽和スルホン酸（またはその塩）のホモポリマーおよびそれと前述のエチレン不飽和モノマーとの共重合体がある。適当なスルホン酸塩含有モノマーとしては芳香族スルホン酸（例えばスチレンスルホン酸、2-ビニル-3-プロモベンゼンスルホン酸、2-ビニル-4-エチルベンゼンスルホン酸、2-アリルベン

ゼンスルホン酸、ビニルフエニルメタンスルホン酸および1-スルフォ-3-ビニルフエニルメタンスルホン酸）、脂肪族スルホン酸（例えば2-スルフォ-4-ビニルフランおよび2-スルフォ-6-アリルフラン）、脂肪族スルホン酸（例えばエチレンスルホン酸および1-フェニルエチレンスルホン酸）、炭素の置換より多くの炭素を含有するスルホン酸（例えば α -スルフォアクリル酸および α -スルフォエチレンスルホン酸）、およびスルホン酸誘導体で加水分解可能で塩となるもの（例えばアルケニルスルホン酸化合物およびスルフォアルキルアクリル酸塩化合物）。

硫酸塩含有高分子電解質の塩類例としてはヒドロキシル基もしくは親置したポリマーに不飽和結合を含有するホモポリマーおよび共重合体を三酸化イオウまたは硫酸と反応させることによつて生成されるものなどがある。例えば、硫酸で処理したポリビニルアル

コール、硫酸で処理したヒドロキシエチルアクリル酸塩、硫酸で処理したヒドロキシプロピルメタアクリル酸塩などである。硫酸塩含有高分子電解質の代表的な例としては、メタアクリルオキシエチルフォスフェートのような磷酸の一部を含有するようなエチレン不飽和モノマーのホモポリマーおよび共重合物などがある。

天然ポリマーおよびその誘導体から形成した高分子電解質の代表的な例としてはカルボン酸や硫酸および磷酸で処理して得たセルロースやでんぶんの誘導体、例えばカルボキシメチルセルロースおよびカルボキシメチルでんぶんなどがある。アルギン酸塩、アイリツシユモス (sarragoin)、たん白質(ゼラチン、カゼインおよび大豆たんぱくなどの)、アラビアゴム、アルギン、かん天、シャチゴム (gum chabai) 等の天然系の陰イオン高分子電解質も役に立つ。

高分子電解質ポリマーは、糊液、乳濁、懸

濁液は沈殿の重合法等の都合のよい重合法によつて準備すればよい。ポリマーはフリーラジカル重合機等によつて得する一方、陰イオン性イオン重合をも含む他の重合機等を利用してよい。高分子電解質は一般に 10,000 ないし 10,000,000 の分子量を有する。

第 2 相の吸着組成物(水に不溶で原子価を共有するように変形重合した)は第 1 相の組成物を水に不溶で水膨潤性を与えるように原子価を共有する変形重合にして作ることができる。このような水に不溶の吸着組成物およびその形成法は特許には前述の米国特許第 3,028,534 号、第 3,668,108 号および第 3,870,781 号に記載されている。ジビニルベンゼンのように典型的な多官能化合物を、硫酸の高分子電解質ポリマー溶液中に入り込むか、複数のポリマー鎖の付近を従属官能基に接合するよう高分子電解質モノマーまたはブレポリマーと均質混合させる。然るにおよび他の放射線のイニシエーションによる重合

機等を有する都合のよい重合方法を用いてもよい。適当な多官能化合物の例としては、ジビニル化合物(ジビニルベンゼン、ジビニルジエチレングリコールジエーテル、ジビニルジフエニルシラン、およびジビニルスルフォンなど)、アリル化合物(例えばトリアリルシアヌール酸塩、トリメチロールプロパンジアリルエーテル、アリルメタアクリル酸塩、アリルアクリル酸塩、アリルクロトン酸塩、ジアリルフタル酸塩、ジアリルこはく酸塩およびジアリルサツカロース)、多官能アクリル酸塩およびメタアクリル酸塩(例えばテトラエチレングリコールジアクリル酸塩、トリエチレングリコールジメタアクリル酸塩、ペンタエリスリトールテトラアクリル酸塩、エチリデンジメタアクリル酸塩、およびトリメチロールプロパントリメタアクリル酸塩)、および多官能アクリルアミドとメタアクリルアミド(例えば、 N, N' -メチレン、ビス-アクリルアミド、および N, N' -メチレ

ンビス-メタアクリルアミド、等)等がある。

この第 3 相の吸着組成物は(あとで述べる第 3 相のうちのひとつと同様に)体外投出液の多量に存在するとき酸液で膨張した吸着子からなるゼラチン状の凝集で、投出液中で自分の少なくとも 15 倍の量を吸収することができ、そしてその凝集を溶解するに充分な圧力にさらしたときにも吸収した投出液を保持できるものとして規定される。

第 3 相の吸着組成物(水に不溶で陰イオンを形成した)は第 1 相の陰イオン高分子電解質に陰イオン形成してそれらを水に不溶ではあるが水膨潤性とすることによつて得することもできる。高分子電解質に陰イオン形成して全体のポリマー組成物を實質的に不溶であるが、水や尿や血などの水性感質中では高度に膨潤可能をよくなるためには多価金属陽イオンを使用する。その陽イオンは少なくとも 3 価の原子価を有しており、周期律表の以下の族に属する過剰金属の陽イオンである。

すなわち MB 、 NA 、 VB 、 VB 、 VB 、
 VB 、 NA 、 VA 、 VA 、 VA 族である。好ま
 しい金属はアルミニウム、ジルコニウム、ク
 ロミウム、チタニウム、および炭素でありそれ
 よりやや重要度は下がるがアンチモニーおよ
 びビスマスである。アルミニウムは特に好ま
 しい金属である。

陽イオンを提供すべき金属化合物は高分子
 電解質の重合に先立つてあるいは重合中にま
 たは重合後高分子電解質溶液に添加される
 が、そのときの唯一の制限は金属化合物がそ
 の系中で少くとも溶解可能であるが溶解する
 かということである。多価金属陽イオンは組
 成物に塩溶性、吸性もしくは中性塩、水酸化
 物、酸化物または陽イオン導入時に高分子電
 解質およびその形成モノマーもまた溶解可能
 である水あるいは有機溶媒中に少くとも限ら
 れた溶解度を有する他の化合物または錯塩の
 形で添加することが出来る。

錯塩の例としては、塩化物、硝酸塩、硫

酸塩、ホウ酸塩、臭化物、ヨウ化物、フッ化
 物、窒化物、過硫酸塩、硫酸塩および砒化
 物など、例えば塩化アルミニウム、硫酸アル
 ミニウム、硫酸第2鉄、硫酸第2鉄、3塩化
 アンチモニー、塩化ビスマス、塩化ジルコニ
 ウム、硫酸第2クロム、および硫酸第2クロ
 ム等である。有機塩の例としては、炭酸塩、
 硫酸塩、硝酸塩、硫酸塩、ヘキサノン酸塩、
 アジピン酸塩、クエン酸塩、乳酸塩、修酸塩、
 オレイン酸塩、プロピオン酸塩、サリチル酸
 塩、アミノ酸塩、グリコール酸塩および糖
 石炭のようなカルボン酸の塩などがある。例
 えば、フオルム酸アルミニウム、塩基性酢
 酸アルミニウム、酢酸クロム、クエン酸アル
 ミニウム、アルミニウムジフオルメート、ア
 ルミニウムトリフオルメート、酢酸チタニ
 ウム、酢酸第2鉄、アルミニウムオクテート、
 オレイン酸第2鉄、乳酸ジルコニウムおよび
 酢酸ジルコニウムなどである。

これらの金属のアンモニウムおよびアミン錯

合体（そして特にアンモニウムを配するもの）
 は特に有用である。そのように錯合体を形成
 しようとするアミン類には、モルフォリン、
 モノエタノールアミン、ジエチルアミノエタ
 ノールおよびエチレンジアミンが含まれる。
 これらのアミン錯合体の例としてはアンモニ
 ウムジルコニルカルボネート、アンモニウム
 ジルコニルグリシネート、およびニトリロト
 リ酢酸のアンモニウムジルコニウムキレート
 が含まれる。アルカリ性の酢酸塩で溶解化可
 能である有機物の多価金属錯合体（塩）も使
 用可能である。酢酸塩、グルタミン酸塩、炭
 酸塩、カルボネート、サリチル酸塩、グリコ
 ール酸塩、オクテート、安息香酸塩、グロ
 コネート（glucosone）、修酸塩および乳酸塩
 のような陰イオンであれば十分である。配位
 子がグリシンやアラニンのような2価配位の
 アミノ酸であるような多価金属キレートは特
 別有用である。

多価金属を含有する他の有機化合物も有用

である。例えば、アルミニウムイソプロポキ
 シド、アセト酢酸チタニウム、アセト酢酸ア
 ルミニウム、アセトアセチル第2クロム、ジ
 ルコニウムエトキシド、クロミツクイソプロ
 キシドおよびトリエチルアルミニウムのよう
 な金属アルコキシド、金属アルキルおよびア
 セト酢酸塩である。

このような金属の1以上の陽イオンは組成
 組成物中に高分子電解質1gあたりの陽イオ
 ンの0.01ないし5.0ミリ当量のレベルで存
 在している。この量は高分子電解質1gあ
 たりの陽イオンの0.1ないし1.0ミリ当量で
 あることが望ましい。陽イオンレベルがもつ
 と低ければポリマー組成物を水に不溶とでき
 ないが、一方陽イオンレベルを高くしすぎると
 ポリマー組成物は水に不溶であるばかりか
 膨潤性を失ってしまう。

高分子電解質が比較的高い分子量を有する
 ときには陽イオンレベルは一定の範囲内で低
 めとすると特に有効である。特に関係なく特

定の範囲内で陽イオンレベルを高くすると、
 乾燥錯合物を吸収すべき液体に溶出したと自
 形成されるゲルを恒久化するのに役立つ。し
 かし多くの応用例(例えば、おむつ、タンホ
 ン等)ではゲルは長時間持続すればよいので
 あるから、それゆえ特定の範囲内で陽イオン
 レベルを低目に保つのが適当である。一般的
 に最適な陽イオンレベルは、その陽イオンの
 イオンサイズによつて変化することが発見さ
 れている。

錯体化学の技術に通じている人は察めるこ
 とであろうが、1個の多価陽イオンのすべて
 の結合子が異なる高分子電解質群につかなけ
 ればならないということはない。特にジルコ
 ニウムのように3より大きい原子価または酸
 化数を有する陽イオンの場合には、内錯塩の
 形成(つまり、1個の陽イオンがただ一本の
 ポリマー鎖につくかもしくは原子価より少な
 い本数の鎖と結合すること)が関与する状態
 によつて示される空間配位や相対強度によつ

あるときも向上する。中和すると水溶液中で
 ポリマー鎖のコイルを伸ばして互すくにする
 ので凝縮にできる錯合物はこのような液体の
 あるときにはより膨張しうるからである。

高分子電解質は、金属錯体を利用して望み
 の水不溶乾燥錯合物を形成するため2.0と
 8.5の間のあるpHにおいて実質的に水溶性で
 なければならない。しかしながら、錯イオン
 化合物の可逆性(共存錯合に対して)は当該
 化学分野ではよく知られていて、一度錯体の
 pHがあるレベル(すなわち可逆性のpH)より
 上にあげると、錯体は壊れ、再び水溶性で非
 吸収性の高分子電解質となる。この錯体形成
 の可逆性を利用して最適な液体適用技術を用
 いて望みの性質にこの錯体を適用するのを容
 易にかつ経済的に行うことができる。適用に
 先立つて最適な塩基を錯体に添加するとそれ
 を溶解させて陽イオンとその水溶性高分子電
 解質とを含む溶液となる。そして適用に際し
 て今度は酸を溶液に添加すると吸収性錯体を

で不特定の程度生ずるのである。従つてここ
 では、高分子電解質1gあたりの陽イオンの
 ミリ当量の特定化は重要ではなくむしろ実験
 結果に基いて述べてある。

組成物の吸収能は高分子電解質を10,000
 ないし10,000,000の特定の範囲内で高
 い分子価レベルを高くしたときの万が向上す
 る。従つて、アリルメタアクリレートのような
 何々の2官能モノマーを、陽イオンにさら
 すのに先立つて、酸を伸ばすために使用でき
 るのである。勿論使用した膨張剤は高分子
 電解質を水性液体に対し不溶にしているけな
 い。こうして高分子電解質の鎖を延長すれば、
 陽イオン融合すべき鎖の本数が少なくなるの
 で陽イオンレベルを低くすることが可能にな
 る。

組成物の吸収能はその陽イオン種の約95
 %まで(図ましくは40ないし85%)アル
 カリ金属の水酸化物、第1、第2あるいは第
 3級アミン等のような適切な塩基で中和して

再形成させる。好ましい技術においては微顆
 性の塩基(水酸化アンモニウムのような)を
 錯体を破壊するのに用いて溶液を乾燥させる
 だけでpHが下がり従つて酸を添加しなくても
 吸収性錯体が再形成されるようにする。高分子
 電解質の酸の強度は可逆性のpHに対して顕
 著な影響がある。酸の強さをあげるほど(つ
 まり、解離のpHを下げることに)、可逆性のpH
 は下がる。例えば、ポリアクリル酸は弱いポ
 リマー酸であるが、pH 8.3ないし9でその錯
 合体を消滅させる。一方スチレンスルホン
 酸は大変強いポリマー酸であるが、pH約3.5
 ないし5.0でその錯合体を破壊させる。

好ましい組成物はポリアクリル酸/アルミ
 ニウム陽イオン錯合体である。アルミニウム
 陽イオンは、フリーラジカル阻害を用いてア
 クリル酸の沈殿重合を行う間断期的なかたち
 で加える(例えば酢酸アルミニウムとして)。
 そして次の式に従つてポリマー1gあたり約
 0.8ミリ当量のアルミニウムを供する。

重量部	成 分
73.07	アクリル酸カリウム
27.74	アクリル酸
0.19	アリルメタアクリレート
1.49	塩基性酢酸アルミニウム

第2および第3種の吸収組成物（水に不溶のもの）においては、ポリマー鎖の間の強いか弱やかな結合のネットワーク（一方においては共有結合で他方においてはイオン結合であるが）のために組成物は水に不溶ではあるが水に膨潤するものととなっている。乾燥吸収組成物は、多数の体内からの排泄液もしくは他の水を含む物質の存在のもとで、液で膨潤した酸粒子をメンバーとするゼラチン状の基質となる。組成物は体外排泄液中において百分の百の少くとも15倍、一般的には少くとも40倍の量の液を吸収する。更に、組成物は染傷を形成するほど強い圧力を受けても（一般に約2.5 psiの圧力まで）吸収した

排泄液を保持する。

組成物の吸収能はその物理的な乾燥時の形状と組織係であるから、組成物はフィルム、粉末、または繊維としても使われる。それは水、血液や尿などのどんな種類の水性液の混合物の吸収物としても利用できるのも他の材料と結びつけて製品をつくる（吸収性包帯、おむつ、衛生ナプキン、生理タンポン、化粧品、吸収性不織布、等々）のは単純で用いる場合（吸収パウダー、悪臭を防ぐための土壌添加剤、汗止め、発芽補助剤、尿を吸収するためのペット用添加剤等々として）同様有用である。本組成物は水の吸収能がその目的でなく手段にすぎない場合（例えば、その組成物が水または体液中で速やかに溶解するようデザインされた錠剤の成分である場合など）の工業製品としても更に利用できるものである。

多価金属陽イオンについて

本発明の表面処理工程において有用な多価金属陽イオンは少くとも2の原子価を有して

より周期表のII族金属または過期表の次のグループ、I B、II B、III B、IV B、V B、VI B、VII B、VIII、III A、IV A、V A、VI Aに属する過期金属の陽イオンである。好ましい金属はアルミニウム、ジルコニウム、クロム、チタンおよび鉛である。アルミニウムがそのうち特に好ましい。

多価金属陽イオンを供する多価金属化合物は吸収物質とともにあるいはそのあとで分散液に加えることができる。多価金属化合物を選択する上で唯一の制限は分散液中で少くともイオン化可能または可溶であるということである。こうして多価金属陽イオンは分散液中に、塩基性、酸性または中性塩、水酸化物、酸化物または分散液中で少くとも懸定された溶解度を有する化合物または錯体の形で添加しうる。

適当な無機塩の例としては、塩化物銅塩、硫酸塩、硝酸塩、臭化物、ヨウ化物、フッ化物、燐化物、過塩素酸塩、硫酸塩および硫

化物などが含まれ更に具体的には、塩化亜鉛、塩化バリウム、塩化アルミニウム、硫酸アルミニウム、硫酸第2鉄、硝酸第2鉄、アンチモニトリクロライド、塩化ビスマス、塩化ジルコニウム、硫酸第2クロム、および硝酸第2クロムなどである。適当な有機塩の例としては、カルボネート、ギ酸塩、酢酸塩、乳酸塩、ヘキサノン酸塩、アジピン酸塩、クエン酸塩、乳酸塩、酪酸塩、オレイン酸塩、プロピオン酸塩、サリチル酸塩、アミノ酸塩、グリコール酸塩および安息香酸塩などで、更に具体的には、酢酸亜鉛、酢酸第2クロム、アルミニウムフォルモアセート、塩基性硫酸アルミ、酢酸第2クロム、クエン酸アルミニウム、アルミニウムジフォルメート、アルミニウムトリフォルメート、酪酸チタニウム、酢酸第2鉄、アルミニウム、オクテート、オレイン酸第2鉄、乳酸ジルコニウムおよび酢酸ジルコニウムなどである。塩基性硫酸アルミは好ましい有機塩のうちの一つである。

これらの金属のアンモニアおよびアミン錯体（そして特にアンモニアの配位したもの）は特に有用である。そのように錯体を形成することが可能なアミンの例としては、モルフォリン、モノエタノール、アミン、ジエチルアミノエタノールおよびエチレンジアミン等が含まれる。これらのアミン錯体の例としては、アンモニウムジルコニルカルボネート、アンモニウムジルコニルグリシネート、およびニトリロトリホスのアンモニウムジルコニウムキレートが含まれる。分散液中に溶解可能な多価金属錯体（塩）あるいは有機酸も使用できる。酢酸塩、グルタミン酸塩、ギ酸塩、炭酸塩、サリチル酸塩、グリコール酸塩、オクトエート、安息香酸塩、クロコネート、他酸塩および乳酸塩などで十分である。グリシンやアラニンのような配位子が2座配位のアミノ酸であるような多価金属キレートは特に有用である。

多価金属を含む他の有機化合物もまた役に

立つ、例えばアルミニウムイソプロポキシド、アセト酢酸チタン、アセト酢酸アルミ、アセト酢酸第2クロム、ジルコニウム、エトキシド、クロミツクイソプロポキシドおよびトリエチルアルミニウムのような金属アルコキシド、金属アルキル、およびアセト酢酸等である。このような金属の一つ以上の錯イオンが分散中に反応状態の吸着組成物1gあたり0.05ないし10.0ミリ当分のレベル、好ましくは0.1ないし2.0ミリ当分の錯イオンが存在している。一般に、反応吸着組成物の粒子形状を細かくすればするほど、より多くのカチオンが必要である。

分散媒について

分散媒の選択はきついものではなく、ただ吸着性組成物が実質的に不溶であればよい。勿論、上に指摘したように分散媒中に多価金属カチオンを導入するために使用した化合物は分散媒中でイオン化可能な状態に溶解可能でなければならぬ。好ましい分散媒は蒸発吸収

組成物が実質的に不溶である次の液体の一つまたはそれ以上である。すなわち、1ないし18個の炭素原子を含む脂肪族または芳香族アルコール（メタノール、エタノール、イソプロパノール、2エチルヘキサノール、ベンジルアルコール、等）、ケトン（アセトン、メチルエチルケトン、等）、アルキルエーテル（エチルエーテル、等）、脂肪族ならびに芳香族エステル（エチル酢酸、ブチルプロピオン酸、等）、5ないし18個の炭素原子を含むアルカン（ヘキサン、ヘプタン、等）、芳香族（ベンゼン、トルエン、等）、水と混和する割合の水との混合物（低級アルキルケトンおよびアルコール、ジオクサン、ジメチルフォルムアミド、等である。ジメチルスルフォキシドおよびテトラヒドロフランのような他の溶剤も使用価値がある。

分散媒は典型的な場合（必ずしもそうでなくともよいが）約0.5ないし100パートのレベル、好ましくは約2ないし10パートの

レベルで使用する（反応状態での吸着組成物100重量部あたり）。

分散物処理について

一度分散物を形成すると、多価金属カチオンが吸着組成物の表面と（更にいえば、その錯イオン高分子溶解質と）錯体を形成するのに十分な時間それは保持される。一般的に、表面では穏やかなレベルでの錯体形成が望ましい。もし表面での錯体形成のレベルが強すぎたり弱すぎたりすると、水への分散性の向上は得られなくなる。与えられたカチオンの錯体形成の最適レベルは分散性そして（または）完全分散時間を種々のレベルの表面交差割合の関数としてプロットすることによって容易に決定しうる。必要な時間は当然望ましい錯イオン形成度および分散を維持する速度の両方にかかっている。一般的に温度は-40℃から+150℃までの範囲、好ましくは25℃から110℃までの範囲に保持する。これらの温度では約1分から数時間、好

ましくは5分から1時間の間に過塩素酸が過剰に生成される。

希望の錯体生成が達成されたら、変性した組成物と分散剤とを適当な方法、例えば分散剤の蒸発または濾過によつて分離する。もし望むなら、変性した組成物は加熱等の適当な方法で乾燥する。

吸着組成物の表面の錯体化によつて、結合密度（すなわち、ポリマー鎖間の結合密度である……その本性がイオン結合か共有結合かとかは問わない）が内部でよりもその表面でより大となつていく錯体が形成される。水に可溶の高分子電解質の場合には、内部の結合密度はゼロかまたは極めて小さい。そしてより高い表面の結合密度は殆どいつていふほど表面処理によつて与えられた錯体化によるものである。水に不溶で水膨潤性の共有交差結合した略イオン高分子電解質の場合には、非変性の組成物中では一般に共有結合密度であるが表面処理の結晶化されるイオン結合が変

性後その密度を補充しているのである。（いくつかの場合には非変性組成物における共有結合密度は内部におけるよりも表面の密度の方が高いかもしれないが、表面処理によつて表面に与えた追加の結合（つまりイオン結合である）の存在によつて変性組成物の分散性は一般に向上するのである）。水に不溶で水膨潤性のイオン錯化合物の場合には、変性前にはイオン結合密度が一般であつたものを変性後にはその表面に追加のイオン結合を与えるのである。この点についていふと、変性前にすでに存在している錯体のカチオンと同数のカチオンをつかつかつてもまたは異なるカチオンを表面処理に際して使つてよいということに注意すべきである。勿論、表面処理に際してのカチオンの有効レンジの方が変性前の錯体形成に際しての有効レンジより大である。また従前のカチオンは前にふれたように個以上のカチオンに限定される。

どの場合でも、吸着組成物を吸着すべき大

量の水性媒体にさらしたときその表面に水を浸透させないゲルを速やかに形成する傾向は表面処理によつて抑制されている。そのため水性媒体はその表面が膨潤してゲルを形成する前に吸着組成物の内部に侵入する機会を得る。吸着組成物の内部による水性媒体の吸着によつて外方への圧力が生じそれによつて水性媒体中の吸着組成物の遅やかな分散が起こる。こうして本発明の方法は、吸着組成物の表面の水性媒体の吸収速度が減少することによつて吸着組成物内部の遅吸収速度を増大させ、この表面吸収速度の慢速によつてこの吸着物質の吸収速度を全体として上昇させているという発明の原理に基づいて作用していると思われる。下に掲げた例中のデータは、本発明の方法によつて変性された吸着組成物が水性媒体にさらしたときの初期分散においても異なっている（すなわち固まりが生じにくいこと）が水性媒体中でより速く完全に分散するということを示すことによつてこの原理を

実証している。勿論、変性された組成物の表面の錯イオン密度がかなり高くなると今度は固まらぬ水の浸透を防げる比較的不浸透性の膜として作用するということも忘れてはならない。しかし上記の作用原理を副においておけば実施者は不必要な実験をしなくとも候補時間や温度および分散中の多価金属カチオンと吸着組成物との比を適当に選択することによつて、個別の応用例の必要に合わせ本発明の方法によつて実現する表面の錯密度を精細に調整することが出来る。

例

次のいくつかの例は本発明の効果を示している。特にそこで記載しない限りは直ちに示している。例Ⅰは硫酸吸着組成物の調整を示し、例Ⅱはこのような硫酸吸着組成物の本発明の方法に従う表面処理法による変性を示し、そして例Ⅲは表面処理法によつて達成された初期分散物の相対的改善性と分散時間を示している。

試料 1 および 17 (非水性沈殿重合法)

例 I

下記に示す方法で陰イオン高分子電解質に
 希く脱塩吸着組成物を得た。

試料 1 は非水性沈殿重合法によつて調製し
 た水膨潤性で水に不溶の露体を示す。試料
 17 は非水性沈殿重合法によつて調製した水
 膨潤性で水に不溶の共有交差結合した共重合
 体を示す。試料 19 および 21 は市販の水溶
 性ポリマーである。試料 23 は市販の水に不
 溶で水膨潤性のグラフト (graft) 共重合体を
 示す。試料 25 は市販の水膨潤性で水に不溶
 の共有交差結合重合体を示す。試料 27、
 29 および 31 は水性溶液重合法による水溶
 性重合体を示す。

添加物 A	試料 1	試料 17
メタノール	280	280
添加物 B		
アクリル酸	100	100
塩基性酢酸アルミ	2	-
水酸化カリウム	50	50
メタノール	200	200
アリルメタアクリレート	0.25	-
N,N'-メチレン ビスアクリルアミド	-	0.75
添加物 C		
メタノール	15	15
1-ブチル パーオキシビツアレート	0.35	0.35

添加物 A を攪拌器、コンデンサー、湯浴を
 取付けた 3 l の丸底フラスコに入れた。25
 % の添加物 B をそのフラスコに添加し内容を
 遊歴するまで加熱した (68℃)。添加物 C
 は一定の速さで 2 時間以上かけて添加した。
 いくらか沈殿が見られたあと添加物 B の濃り
 をゆつくり均一の速さで 1 時間以上にわたつ
 て添加した。3 時間の全反応時間のあと、生
 成物を廃却濾過洗浄したのち 80℃ で乾燥し
 たところ白色重合粉末を得た。

試料 19、21、23 および 25 (市販の
 重合体の使用)

UMC-7A は 0.75 の R₂ を有するソデ
 イウムカルボキシメチルセルロースに対する
 ヘルクレス社 (Hercules Inc.) の商品名であ
 る (試料 19)。

Galman は昆布 (kelp) から抽出した
 多糖類に対するケルコ社 (Kelco Corp) の商
 品名である (試料 21)。

SUM-502S はジエネラルミルズ社

(General Mills, Inc.) のケン化でんぶんの
 部分中和塩とアクリロニトリルとのグラフト
 共重合体に対する商品名である (試料 23)。

UCMA-1300 はアクリル酸とアク
 リルアミドとの共有交差結合による共重合体
 に対するダウケミカル社 (Dow Chemical Co.)
 の商品名である (試料 25)。

試料 27、29 および 31 (水性溶液重合
 法)

各試料で使用したモノマーは次の通りであ
 った。

試料	モノマー (質量比)
27	メタアクリルアミド/メタアクリル酸 (50/50)
29	ヒドロヘキシルメタアクリレート/2- アクリルアミド-2-メチルプロパンス ルフォン酸 (50/50)
31	アクリル酸

水 2210g と全部で 400g のモノマー
を攪拌器、コンデンサー、窒素パージ
(nitrogen purge) および撹拌つき 3 升丸
底フラスコに入れた。70℃まで加熱しながら
窒素パージの下で内容物を撹拌した。70℃
で 80g の水と 0.80g のアンモニウムパー
スルフェートの溶液を 30 分以上にわたつ
て少しずつ均一に加えた。その間温度は 70℃
に保つていた。撹拌の 1 時間後に、0.40g
のアンモニアパーサスルフェートを添加した。
3.5 時間に及ぶ全反応時間の後反応系を冷却
した。最終重合体生成物を乾燥してから粉に
粉砕した。

例 II

試料 2 をいし 16、18、20、22、
24、26、28、30 および 32 を調製す
るために例 I に述べた乾燥吸着組成物 20g
を攪拌器、撹拌およびコンデンサー付きの
500cc フラスコに加えた。表 I に示してあ
る分散液を 80g 添加したのち表 I に示した

多価金属化合物を添加した。混合物を撹拌し
68℃にまで加熱して 1 時間保持した。そう
してできた分散物を冷却通過し、そして固形
生成物を分析するための乾燥した。

例 III

試料 I をいし 32 のそれぞれに対して、
100g の水を入れたビーカーを強く撹拌し
その間に 0.50g の炭酸石灰もしくは未炭酸
の乾燥吸着組成物をすばやくその中にあけた。
初期分散物（固まりがない）が実質的に完全
に分散するまでの時間（分散時間）を表 I に
記載してある。初期分散の評価は次のように
定めた。優秀（固まりが認められない）、
劣（71 ないし 90% 分散）、良（51 ない
し 70% 分散）、可（41 ないし 50% 分散）、
不可（21 ないし 40% 分散）、劣（20%
以下の分散）。

本発明の表面処理法によつて加工した乾燥
吸着組成物（試料 2 をいし 16、18、20、
22、24、26、28、30 および 32）

の各場合にはそれぞれに対応している乗数性
の乾燥吸着組成物（試料 1、17、21、
23、25、27、29 および 31）の場合
に比して初期分散物が飛躍的に改善され分散
時間が実質的に減少している。

表 I

試料	ベースポリマー 例	多価金属化合物	分散媒 *	陽イオンレベル **	初 期 分散物	分散時間 (分)
1	-		M ₂ O ₂ H	-	劣	15
2	1	塩基性酢酸アルミ	90M ₂ O ₂ H/10M ₂ O	0.21	劣	5
3	1	"	"	0.42	"	4
4	1	"	90M ₂ O ₂ H/10M ₂ O	0.42	"	4
5	1	酢酸クロム	90M ₂ O ₂ H/10M ₂ O	0.42	優秀	4
6	1	酢酸ジルコニウム	"	0.42	"	4
7	1	酢酸亜鉛	"	3.48	"	1
8	1	カプリル酸アルミ	"	0.42	良	5
9	1	アセト酢酸第1マンガン	トルエン	0.64	劣	5
10	1	アセト酢酸第1コバルト	"	0.64	良	5
11	1	酢酸バリウム	90M ₂ O ₂ H/10M ₂ O	0.42	"	10
12	1	アルミニウムイソプロポキシド	トルエン	0.64	"	6
13	1	アルミニウムアセチルアセトネート	"	1.08	優秀	1
14	1	カプリル酸第1スズ	M ₂ O ₂ H	0.42	良	7
15	1	アセチルアセトン第2マンガン	ヘキサン	1.00	劣	7
16	1	塩基性酢酸アルミ	80ジオクサン/20M ₂ O	1.50	優秀	4
17	-	-	-	-	劣	16
18	17	塩基性酢酸アルミ	90M ₂ O ₂ H/10M ₂ O	0.64	優秀	6
19	-	-	-	-	劣	>30
20	18	塩基性酢酸アルミ	M ₂ O ₂ H	0.64	優秀	15
21	-	-	-	-	劣	>30
22	21	塩基性酢酸アルミ	M ₂ O ₂ H	0.64	優秀	5
23	-	-	-	-	劣	>20
24	23	酢酸クロム	M ₂ O ₂ H	0.30	優秀	5
25	-	-	-	-	劣	8
26	25	塩基性酢酸アルミ	90M ₂ O ₂ H/10M ₂ O	0.21	優秀	2
27	-	-	-	-	劣	>15
28	27	塩基性酢酸アルミ	M ₂ O ₂ H	0.88	良	15
29	-	-	-	-	劣	>15
30	29	塩基性酢酸アルミ	M ₂ O ₂ H	0.88	良	15
31	-	-	-	-	劣	>15
32	31	酢酸ジルコニウム	M ₂ O ₂ H	0.64	優秀	8

表 I の注 * M₂O₂Hはメタノール、M₂O₂Hはエタノール(比は重量比)

** 乾燥状態で吸着量1gあたりの陽イオンミリ当量

要約すると、陰イオン高分子電解質（ここに記述されているどの種類のものであれ）をベースとする膜組成物の水分散性または濡れは、陰イオン高分子電解質を多価金属陽イオンと錯イオン結合を形成させる膜処理法によつて改善される。この加工した組成物粒子はその内部におけるよりも表面においてより高い結合密度を有しているので、それを多量の水性液に急激に露出したとき比較的に水不浸透性のゲルがその表面にできるのを水性液が粒子内部に侵入しそこで粒子を中から破裂させるように振とう時期まで遅らせる。そうして充分に分散するのに要する時間を短縮すると同時に初期にできる固まりを減少させる。

本発明の好ましい実施例が描かれているので、当業者には個々の変更や改良が容易に明らかとなるであろう。従つて、本発明の精神と範囲はここに掲げた特許請求の範囲にのみ限定され前述の開示には限定されぬべきであ

- (3) 委任状および翻訳文 各 1 通
 (4) 優先権主張証明 および翻訳文 各 1 通
 (5) 出願審査請求 1 通

7. 前記以外の発明者および代理人の住所・氏名

(1) 発明者 アメリカ合衆国、ニュージャージー 08520
 イースト クインザー、メイプルストリーム
 ロード 72
 ハワード ジー、カツツ

(2) 代理人 〒100
 東京都千代田区丸の内 3-2-3 富士ビル 510 号室
 電話 (213) 1561 ~ 1565

(6655) 弁護士 安 井 幸 一

同 上
 (6459) 弁護士 栗 林 寅

同 上
 (7897) 弁護士 倉 持 裕

上申：本願の「発明の名称」は原米国出願に記載の「発明の名称」と相違いたしておりますが内容同一であります。